

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-015750
(43)Date of publication of application : 18.01.2002

(51)Int.Cl. H01M 8/02
// H01M 8/10

(21)Application number : 2000-197454 (71)Applicant : MITSUBISHI PLASTICS IND LTD
(22)Date of filing : 30.06.2000 (72)Inventor : MIYAGAWA MICHINARI
YAMAMOTO RYOICHI

(54) FUEL CELL SEPARATOR

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a fuel cell separator that is excellent in moldability, strength and corrosion resistance.

SOLUTION: The fuel cell separator comprises a metal substrate which is coated with a resin layer mixed with a conductive filler, and in which the volume resistivity of the resin layer is 1.0 $\Omega \cdot \text{cm}$ or less.

* NOTICES *

JPO and INPI are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.**** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1]A separator for fuel cells which covers a resin layer which mixed a conductive filler at least on one side of a metal substrate, and is characterized by volume resistivity of a resin layer being 1.0 or less ohm-cm.

[Claim 2]The separator for fuel cells according to claim 1 characterized by coming to choose said metal substrate out of stainless steel, titanium, aluminum, copper, nickel, and steel.

[Claim 3]The separator for fuel cells according to claim 1 characterized by coming to choose said conductive filler out of carbon, metallic carbide, a metallic oxide, metal nitride, and metal powder.

[Claim 4]The fuel cell separator according to claim 1, wherein said resin layer is chosen from a fluoro-resin and fluorocarbon rubber.

[Claim 5]The separator for fuel cells according to claim 1 to 4 being a range whose thickness of said resin layer is 10-300 micrometers.

[Translation done.]

* NOTICES *

JPO and INPI are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.**** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates to the separator for fuel cells, and it is provided between the single cells which adjoin in the fuel cell which carries out the plural laminates of the single cell, and constitutes it in detail. A fuel gas flow route and an oxidizing gas passage are formed between electrodes, and it is a separator for fuel cells which separates fuel gas and oxidizing gas, and is related with the separator for fuel cells excellent in especially a moldability, intensity, and corrosion resistance.

[0002]

[Description of the Prior Art] The separator which constitutes a fuel cell, especially a polymer electrolyte fuel cell contacts each electrode which pinches a solid-electrolyte membrane from both sides, is arranged, and forms distributed gas passages, such as fuel gas and oxidant gas, between these electrodes.

The thing excellent in the collecting performance which contacts an electrode and derives current is required.

[0003] Generally as a separator for fuel cells, it comprises metallic materials, such as precise carbon graphite which was excellent in intensity and conductivity as a substrate or stainless steel (SUS), titanium, and aluminum.

[0004]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] Usually, many heights for forming a gas passageway, a slot, etc. are formed in the field which counters the electrode of the above-mentioned separator. Therefore, although high collecting performance is maintained also by prolonged use highly [electrical conductivity] in the separator which comprises above-mentioned precise carbon graphite, Since it is a very weak material, while it is not easy to machine cutting etc. that many heights and slots should be formed in the surface of a separator and process cost becomes high, there is a problem that mass production is difficult.

[0005] On the other hand, in the separator which comprises an above-mentioned metallic material, since it excels in intensity and ductility as compared with precise carbon graphite, there is an advantage that press working of sheet metal is possible for formation of many heights for forming a gas passageway, a slot, etc., its process cost is cheap, and mass production is also easy. However, under the operating environment of a separator, the oxide film by corrosion is generated by the surface, and I am [a metallic material] easy, and the contact resistance of the oxide film and electrode which were generated becomes large, and it has the problem of reducing the collecting performance of a separator.

[0006] Then, the material which coated the surface of the metallic material which was excellent in processability as a component of a separator with noble metal materials, such as gold excellent in corrosion resistance, is examined. However, since such a material is very expensive, there is a problem that flexibility is missing.

[0007] This invention relates to the separator for fuel cells with which it was what solved the above-mentioned problem, and electrical conductivity was high, was excellent in corrosion resistance, and made the subject the metal substrate comparatively producible by low cost.

[0008]

[Means for Solving the Problem] A place which this invention finds out a separator for fuel cells which can cancel an above-mentioned problem, and is made into the gist, A resin layer which mixed a conductive filler at least on one side of a metal substrate is covered, and it is in a separator for fuel cells, wherein volume resistivity of a resin layer is 1.0 or less ohm·cm. It comes to choose a conductive filler out of carbon, metallic carbide, a metallic oxide, metal nitride, and metal powder, including coming to choose the above-mentioned metal substrate out of stainless steel, titanium, aluminum, copper, nickel, and steel. It includes that it is a range whose thickness of coming to choose a resin layer out of a fluoro-resin and fluorocarbon rubber and a resin layer is 10–300 micrometers.

[0009]

[Embodiment of the Invention] Hereafter, this invention is explained in detail. As a metal substrate used with the separator of this invention, the sheet metal which consists of stainless steel, titanium, aluminum, copper, nickel, and steel can use it conveniently, and the range of thickness of 0.1 mm – 1.5 mm is desirable. An etching layer may be provided in the above-mentioned metal substrate surface in order to improve an adhesive property with a resin layer, and as for etching layer thickness, 10–30 micrometers is desirable.

[0010] As what is used for a resin layer, a fluoro-resin and fluorocarbon rubber can be used from chemical resistance. Specifically PTFE (polytetrafluoroethylene), PFA (tetrafluoroethylene perfluoroalkyl vinyl ether copolymer), FEP (tetrafluoroethylene hexafluoropropylene copolymer), EPE (tetrafluoroethylene hexafluoropropylene perfluoroalkyl vinyl ether copolymer), ETFE (tetrafluoroethylene ethylenic copolymer), PCTFE (polychlorotrifluoroethylene resin), ECTFE (chlorotrifluoroethylene ethylenic copolymer), PVDF (polyvinylidene fluoride), PVF (polyvinyl fluoride), THV (tetrafluoroethylene hexafluoropropylene vinylidene fluoride copolymer), VDF-HFP (fluoridation vinylidene-hexafluoropropylene copolymer). At least one or more kinds of the fluoro-resins and fluorocarbon rubbers which comprise TFE-P (fluoridation vinylidene-propylene copolymer), fluorine-containing silicone series rubber, fluorine-containing vinyl ether system rubber, fluorine-containing phosphazene system rubber, and fluorine-containing thermoplastic elastomer can be used. PVDF, THV, VDF-HFP, and TFE-P which contain vinylidene fluoride from a point of a moldability especially in the resin which illustrated [above-mentioned] are preferred.

[0011] It is necessary to mix a conductive filler to the above-mentioned fluoro-resin and fluorocarbon rubber, and carbon, metallic carbide, a metallic oxide, metal nitride, and metal powder can use it conveniently as a conductive filler.

[0012] As carbon, as black lead, carbon black, expanded graphite, and metallic carbide, tungsten carbide, As silicon carbide, carbonized calcium, zirconium carbide, tantalum carbide, titanium carbide, niobium carbide, carbonization molybdenum, vanadium carbide, and a metallic oxide, As titanium oxide, ruthenium oxide, indium oxide, and metal nitride, chromium nitride, As aluminum nitride, molybdenum nitride, zirconium nitride, tantalum nitride, titanium nitride, gallium nitride, niobium nitride, vanadium nitride, boron nitride, and metal powder, titanium powder, nickel powder, tin powder, tantalum powder, and niobium powder can be illustrated. In especially the above-mentioned conductive filler, use of metallic carbide is preferred from a conductive and acid-proof point.

[0013] The volume resistivity of a resin layer should just decide the mixing ratio of a conductive filler suitably to become 1.0 or less ohm·cm at 20 % of the weight – 80 % of the weight, and if the mixing ratio becomes large, volume resistivity is inferior to conductivity in it at less than 20 % of the weight and 80 % of the weight is exceeded, shaping will become difficult easily.

[0014] The thickness of a resin layer has the preferred range of 10–300 micrometers, and it is easy to produce the problem that a separator becomes thick and the fuel cell by which the stack was carried out becomes large in less than 10 micrometers at that in which there are few anticorrosion effects to a metal substrate, and they exceed 300 micrometers.

[0015] Although the manufacturing method in particular of the separator of this invention is not limited, after laying the sheet made of a fluoro-resin which consists of a presentation which was produced beforehand, and which was mentioned above in one side or both sides of a metal

substrate and carrying out laminate integration by a heat pressing method, the method of forming a height and a slot is preferred from points, such as productivity. The method of producing a sheet should just be based on the usual extrusion molding and roll diffusion bonding, and Press conditions usual also in the conditions of a heat pressing method, What is necessary is just to carry out in cooking temperature [of 120 ** - 300 **], and pressure 2.9×10^6 Pa - a 9.8×10^6 Pa (30 kgf/cm^2 - 100 kgf/cm^2) grade. Hereafter, although an example is described, this invention is not limited to this.

[0016]

[Example]Fluoro-resin (THV) 70 weight section and conductive filler (tungsten carbide) 30 weight section were mixed with the biaxial extrusion machine. The 200-micrometer-thick sheet was created for the above-mentioned mixture in roll forming (roll temperature of 240 **). The metal substrate used what formed a 20-micrometer etching layer for SUS304 board with the drug solution etching method, and laid it in order of the above-mentioned fluororesin sheet / etching SUS board / fluororesin sheet, and laminate integration was carried out by heat pressing processing. Heat pressing conditions were performed in pressure 3.5×10^6 Pa (36 kgf/cm^2) for the temperature of 170 **, and 10 minutes. Using the above-mentioned layered product, press working of sheet metal was carried out, the gas passageway was formed again, and the separator for fuel cells was obtained. Press conditions were performed in pressure 3.5×10^6 Pa (36 kgf/cm^2) for a room temperature and 10 minutes.

[0017]The obtained fuel cell separator has the good adhesive property of a fluororesin layer and SUS, and does not have exfoliation etc., volume resistivity was excellent in 0.01 ohm-cm and conductivity, and there was no performance top problem as a fuel cell separator.

[0018]

[Effect of the Invention]As mentioned above, the separator for fuel cells of this invention is excellent in a moldability, intensity, and corrosion resistance, and its availability as an object for fuel cells in which prolonged operation is possible is large.

[Translation done.]

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2002-15750

(P2002-15750A)

(43)公開日 平成14年1月18日 (2002.1.18)

(51)Int.Cl.
H 01 M 8/02
// H 01 M 8/10

識別記号

F I
H 01 M 8/02
8/10テ-ヤコ-ド(参考)
B 5 H 0 2 6

審査請求 未請求 請求項の数5 OL (全3頁)

(21)出願番号 特願2000-197454(P2000-197454)

(71)出願人 000006172

三菱樹脂株式会社

東京都千代田区丸の内2丁目5番2号

(22)出願日 平成12年6月30日 (2000.6.30)

(72)発明者 宮川 倫成

神奈川県平塚市真土2480番地 三菱樹脂株
式会社平塚工場内

(72)発明者 山本 良一

神奈川県平塚市真土2480番地 三菱樹脂株
式会社平塚工場内Fターム(参考) 5H026 AA06 BB04 CC03 CX04 EE02
EE05 EE11 EE12 EE14 EE19
HH03 HH06

(54)【発明の名称】 燃料電池用セバレータ

(57)【要約】

【課題】 成形性、強度、耐食性に優れた燃料電池用セ
バレータを提供する。【解決手段】 金属基板に導電性フィラーを混合した樹
脂層を被覆し、樹脂層の体積抵抗率が1.0Ω・cm以
下であることを特徴とする燃料電池用セバレータ。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 金属基板の少なくとも片面に導電性フィラーを混合した樹脂層を被覆し、樹脂層の体積抵抗率が $1.0\Omega \cdot \text{cm}$ 以下であることを特徴とする燃料電池用セバレータ。

【請求項2】 前記金属基板がステンレス鋼、チタン、アルミニウム、銅、ニッケル、鋼から選ばれてなることを特徴とする請求項1記載の燃料電池用セバレータ。

【請求項3】 前記導電性フィラーが、カーボン、金属炭化物、金属酸化物、金属窒化物及び金属粉末から選ばれてなることを特徴とする請求項1記載の燃料電池用セバレータ。

【請求項4】 前記樹脂層がフッ素樹脂及びフッ素ゴムから選ばれることを特徴とする請求項1記載の燃料電池セバレータ。

【請求項5】 前記樹脂層の厚みが $10\sim300\mu\text{m}$ の範囲であることを特徴とする請求項1乃至4記載の燃料電池用セバレータ。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は燃料電池用セバレータに係り、詳しくは単セルを複数積層して構成する燃料電池において接続する単セル間に設けられ、電極との間で燃料ガス流路及び酸化ガス流路を形成すると共に燃料ガスと酸化ガスとを隔てる燃料電池用セバレータであって、特に成形性、強度、耐食性に優れた燃料電池用セバレータに関する。

【0002】

【従来の技術】燃料電池、特に固体高分子型燃料電池を構成するセバレータは、固体電解質膜を両側から挟持する各電極に接触して配置されて、該電極との間に燃料ガス、酸化剤ガス等の供給ガス通路を形成するものであり、電極と接触して電流を導出する集電性能に優れたものが要求される。

【0003】一般に燃料電池用セバレータとしては、基材として強度、導電性に優れた緻密カーボングラファイト、またはステンレス鋼(SUS)、チタン、アルミニウム等の金属材料で構成されている。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】通常、上記セバレータの電極に対向する面にはガス流路を形成するための多数の突起部、溝部等が形成される。従って、上記の緻密カーボングラファイトにて構成されるセバレータでは、電気伝導性が高く、かつ長期間の使用によっても高い集電性能が維持されるが、非常に脆い材料であることからセバレータの表面に多数の突起部や溝部を形成すべく切削加工等の機械加工を施すことは容易ではなく加工コストが高くなるとともに量産が困難であるという問題がある。

【0005】一方、上記金属材料にて構成されるセバレ

ータにおいては、緻密カーボングラファイトに比較して強度、延性に優れていることからガス流路を形成するための多数の突起部、溝部等の形成はプレス加工が可能であって加工コストが安価で量産も容易であるという利点がある。しかしながら、金属材料はセバレータの使用環境下では、その表面に腐食による酸化膜が生成され易く、生成された酸化膜と電極との接触抵抗が大きくなり、セバレータの集電性能を低下させるという問題がある。

10 【0006】そこで、セバレータの構成材料として加工性に優れた金属材料の表面に、耐食性に優れた金等の貴金属材料をコーティングした材料が検討されている。しかしながら、このような材料は極めて高価なために汎用性に欠けるという問題がある。

【0007】本発明は、上記問題を解決したもので電気伝導性が高く、耐食性に優れ、比較的低成本で生産可能な金属基板を主体とした燃料電池用セバレータに関する。

【0008】

20 【課題を解決するための手段】本発明は上述の問題点を解消できる燃料電池用セバレータを見出したものであり、その要旨とするところは、金属基板の少なくとも片面に導電性フィラーを混合した樹脂層を被覆し、樹脂層の体積抵抗率が $1.0\Omega \cdot \text{cm}$ 以下であることを特徴とする燃料電池用セバレータにある。上記金属基板がステンレス鋼、チタン、アルミニウム、銅、ニッケル、鋼から選ばれてなることを含み、また、導電性フィラーが、カーボン、金属炭化物、金属酸化物、金属窒化物及び金属粉末から選ばれてなること、樹脂層がフッ素樹脂及び

30 フッ素ゴムから選ばれてなること及び樹脂層の厚みが $10\sim300\mu\text{m}$ の範囲であることを含んでいる。

【0009】

【発明の実施の形態】以下、本発明を詳細に説明する。本発明のセバレータで使用する金属基板としては、ステンレス鋼、チタン、アルミニウム、銅、ニッケル、鋼からなる薄板が好適に使用でき、厚みは $0.1\text{mm}\sim1.5\text{mm}$ の範囲が望ましい。上記の金属基板表面には樹脂層との接着性を改良する目的でエッチング層を設けてもよく、エッチング層厚みは $10\sim30\mu\text{m}$ が望ましい。

40 【0010】樹脂層に使用するものとしては耐薬品性からフッ素樹脂及びフッ素ゴムが使用できる。具体的には、PTFE(ポリテトラフルオロエチレン)、PFA(テトラフルオロエチレン-バーフルオロアルキルビニルエーテル共重合体)、FEP(テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン共重合体)、EPE(テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン-バーフルオロアルキルビニルエーテル共重合体)、ETFE(テトラフルオロエチレン-エチレン共重合体)、PCTE(ポリクロロトリフルオロエチレン)、ECTFE(クロロトリフルオロエチレン共重合

体)、PVDF(ポリフッ化ビニリデン)、PVF(ポリビニルフルオライド)、THV(テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン-フッ化ビニリデン共重合体)、VDF-HFP(フッ化ビニリデン-ヘキサフルオロプロピレン共重合体)、TFE-P(フッ化ビニリデン-プロピレン共重合体)、含フッ素シリコーン系ゴム、含フッ素ビニルエーテル系ゴム、含フッ素フォスファゼン系ゴム、含フッ素熱可塑性エラストマーから成る少なくとも1種類以上のフッ素樹脂及びフッ素ゴムが使用できる。上記例示した樹脂では、成形性の点から特にフッ化ビニリデンを含むPVDF、THV、VDF-HFP及びTFE-Pが好ましい。

【0011】上記フッ素樹脂及びフッ素ゴムには導電性フィラーを混合する必要があり、導電性フィラーとしては、カーボン、金属炭化物、金属酸化物、金属窒化物及び金属粉末が好適に使用できる。

【0012】カーボンとしては黒鉛、カーボンブラック、膨張黒鉛、金属炭化物としてはタンクステンカーバイト、シリコンカーバイト、炭化カルシウム、炭化ジルコニアム、炭化タンタル、炭化チタン、炭化ニオブ、炭化モリブデン、炭化バナジウム、金属酸化物としては、酸化チタン、酸化ルテニウム、酸化インジウム、金属窒化物としては窒化クロム、窒化アルミニウム、窒化モリブデン、窒化ジルコニアム、窒化タンタル、窒化チタン、窒化ガリウム、窒化ニオブ、窒化バナジウム、窒化ホウ素、金属粉末としては、チタン粉、ニッケル粉、錫粉、タンタル粉、ニオブ粉が例示できる。上記の導電性フィラーでは、特に金属炭化物の使用が導電性、耐酸性の点から好ましい。

【0013】導電性フィラーの混合比率は20重量%～80重量%で樹脂層の体積抵抗率が $1.0\Omega \cdot \text{cm}$ 以下になるように適宜決めれば良く、混合比率が20重量%未満では体積抵抗率が大きくなり導電性に劣り、80重量%を越えると成形が困難になり易い。

【0014】樹脂層の厚みは10～300μmの範囲が好ましく、10μm未満では金属基板への耐食効果が少なく、300μmを越えるものではセパレータが厚くな

りスタックされた燃料電池が大きくなるという問題が生じ易い。

【0015】本発明のセパレータの製造方法は特に限定されないが、予め製膜された上述した組成からなるフッ素樹脂製シートを金属基板の片面又は両面に載置し、熱プレス法で積層一体化した後、突起部や溝部を形成する方法が生産性等の点から好ましい。シートの製膜法は通常の押出成形、ロール成形法によればよく、熱プレス法の条件も通常のプレス条件、加熱温度120℃～300℃、圧力 $2.9 \times 10^6 \text{ Pa} \sim 9.8 \times 10^6 \text{ Pa}$ ($30 \text{ kgf/cm}^2 \sim 100 \text{ kgf/cm}^2$)程度にて行なえばよい。以下、実施例について説明するが、本発明はこれに限定されるものではない。

【0016】

【実施例】フッ素樹脂(THV)70重量部と導電性フィラー(タンクステンカーバイト)30重量部を2軸押出機にて混合した。上記混合物をロール成形(ロール温度240℃)にて厚さ200μmのシートを作成した。金属基板はSUS304板を薬液エッチング法にて20μmのエッチング層を形成したものを使用し、上記のフッ素樹脂シート/エッチングSUS板/フッ素樹脂シートの順に載置し、熱プレス加工にて積層一体化した。熱プレス条件は温度170℃、10分、圧力 $3.5 \times 10^6 \text{ Pa}$ (36 kgf/cm^2)にて行った。上記積層体を用い、再度、プレス加工してガス流路を形成し燃料電池用セパレータを得た。プレス条件は室温、10分、圧力 $3.5 \times 10^6 \text{ Pa}$ (36 kgf/cm^2)にて行った。

【0017】得られた燃料電池セパレータはフッ素樹脂層とSUSとの接着性が良好で剥離等がなく、体積抵抗率が $0.01\Omega \cdot \text{cm}$ と導電性に優れ、燃料電池セパレータとして性能上問題は無かった。

【0018】

【発明の効果】上述したように、本発明の燃料電池用セパレータは成形性、強度、及び耐食性に優れており、長時間の運転が可能な燃料電池用としての利用性が大きい。